

**N-SUBSTITUTED INDOLE DERIVATIVE, METHOD FOR PRODUCING THE SAME,
AND PEST-CONTROLLING AGENT CONTAINING THE SAME AS ACTIVE
INGREDIENT**

3

Publication number: JP2003040866
Publication date: 2003-02-13
Inventor: TANABE TOMOTSUGU; HOTTA HIROKI; TOTANI
TETSUYA; HOSODA KATSUHIKO
Applicant: NIPPON KAYAKU KK
Classification:
- international: **A01N43/38; A01N43/40; C07D209/12; C07D209/42;
C07D401/04; C07D209/12; C07D209/42; A01N43/34;
C07D209/00; C07D401/00; C07D209/00; (IPC1-7):
C07D209/12; A01N43/38; A01N43/40; C07D209/42;
C07D401/04**
- european:
Application number: JP20010230709 20010731
Priority number(s): JP20010230709 20010731

Report a data error here

Abstract of JP2003040866

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a new safe pest-controlling agent effective at a small amount.
SOLUTION: This N-substituted indole derivative is represented by general formula (1) (wherein, X is N or CCl; R1 is a 1-6C alkyl group which may be substituted; R2 is H or a 1-6C alkyl group which may be substituted; R3 is H, a 1-6C alkyl group which may be substituted, a 1-6C alkoxy group which may be substituted; a halogen, NO2 or CN; R4 is a 1-6C alkyl group which may be substituted, a 1-6C alkoxy group which may be substituted or a halogen; R5 is a 1-6C alkyl group which may be substituted, a 1-6C alkoxy group which may be substituted or a halogen; and n is 1 or 2).

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(43)公開日 平成15年2月13日(2003.2.13)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード(参考)
C 0 7 D 209/12		C 0 7 D 209/12	4 C 0 6 3
A 0 1 N 43/38		A 0 1 N 43/38	4 C 2 0 4
43/40	1 0 1	43/40	1 0 1 M 4 H 0 1 1
C 0 7 D 209/42		C 0 7 D 209/42	
401/04		401/04	

審査請求 未請求 請求項の数9 O L (全 19 頁)

審査請求 未請求 請求項の数9 OL (全 19 頁)

(21)出願番号 特願2001-230709(P2001-230709)

(22) 出願日 平成13年7月31日(2001.7.31)

(71)出願人 000004086

日本化薬株式会社

東京都千代田区富士見1丁目11番2号

(72)発明者 田辺 知嗣

埼玉県春日部市粕壁東3-4-21-204号

(72)発明者 堀田 博樹

埼玉県さいたま市上落合 6-8-25-204

(72) 発明者 戸谷 哲也

埼玉県さいたま市上落合 6-7-8-201

(72)発明者 細田 勝彦

埼玉県さいたま市蓮沼276-5

[最終頁に続く](#)

(54)【発明の名称】 N置換インドール誘導体、その製造法及びそれを有効成分とする害虫防除剤

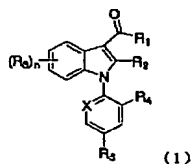
(57) 【要約】

る、N置換インドール誘導体を開示する。

【課題】低薬量で有効かつ安全な新規防除剤の提供。

【解決手段】一般式 (1)

【化1】



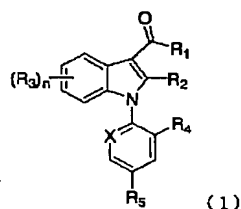
式中、例えば、XがNまたはCClを示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₂はHまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₄は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₅は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；nは1または2で示され

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】一般式(1)

【化1】



(1)

【式中XはNまたはCR₆を示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基またはNR₇R₈を示し；R₂はH、ハロゲンまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂、CN、COR₉、CO₂R₉、CONR₇R₈、SO₂R₉、SO₂NR₇R₈、SOR₉、SO₂R₉、OCOR₉、OCO₂R₉、OCONR₇R₈、OSO₂R₉、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいヘテロアリール基または置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基を示し；R₄はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂、CN、COR₉、CO₂R₉、CONR₇R₈、SO₂R₉、SO₂NR₇R₈、SOR₉、SO₂R₉、OCOR₉、OCO₂R₉、OCONR₇R₈、OSO₂R₉、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいヘテロアリール基または置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基を示し；R₅はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₆はHまたはハロゲンを示し；R₇、R₈およびR₉はそれぞれ独立にH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示すが、R₇およびR₈で5～6員環を形成してもよく；nは1、2、3または4を示す。】で表されるN置換インドール誘導体。

【請求項2】XがN、CF、CCIまたはCBrを示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基またはNR₇R₈を示し；R₂はHまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₄は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈またはハロゲンを示し；R₅は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₆は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₇、R₈およびR₉はそれぞれ独立にH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示すが、R₇およびR₈で5～7員環を形成してもよく；nは1、2または3である請求項1に記載のN置換インドール誘導体。

されていてもよいアルキルチオ基、NR₇R₈またはハロゲンを示し；R₅は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₆、R₇、R₈およびR₉はそれぞれ独立にH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示すが、R₇およびR₈で5～7員環を形成してもよく；nは1、2または3である請求項1に記載のN置換インドール誘導体。

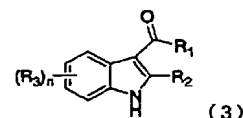
【請求項3】XがNまたはCCIを示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₂はHまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₄は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₅は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；nは1または2である請求項1に記載のN置換インドール誘導体。

【請求項4】XがNまたはCCIを示し；R₁はハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₂はHまたはC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₄はハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₅はハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；nは1または2である請求項1に記載のN置換インドール誘導体。

【請求項5】XがNまたはCCIを示し；R₁はトリフルオロメチル基を示し；R₂はHまたはメチル基を示し；R₃はH、メチル基、トリフルオロメチル基またはハロゲンを示し；R₄はハロゲンを示し；R₅はトリフルオロメチル基またはハロゲンを示し；nは1である請求項1に記載のN置換インドール誘導体。

【請求項6】一般式(3)

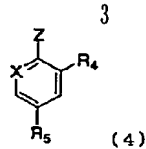
【化2】



(3)

【式中R₁、R₂、R₃およびnは請求項1で定義したものと同一ものを示す】で表される化合物を一般式(4)

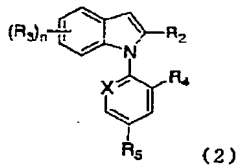
【化3】



〔式中X、R₁およびR₂は請求項1で定義したものと同一ものを示し、ZはハロゲンまたはR₁₀SO₂を示し、R₁₀は置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基または置換されていてもよいC₁~C₆のアリール基を示す〕で表される化合物と縮合反応させることを特徴とするか、又は一般式

(2)

〔化4〕



〔式中R₂、R₃、R₄、R₅、Xおよびnは請求項1で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物を一般式

(6)

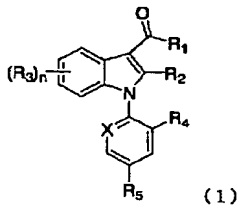
R₁COCl (6)

〔式中R₁は請求項1で定義したものと同一ものを示す〕、または一般式 (7)

(R₁CO)₂O (7)

〔式中R₁は請求項1で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物と反応させることを特徴とする、一般式 (1)

〔化5〕



〔式中R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、Xおよびnは請求項1で定義したものと同一ものを示す〕で表されるN置換インドール誘導体の製造法。

〔請求項7〕請求項1~5のいずれか1項に記載のN置換インドール誘導体を有効成分として含有することを特徴とする殺虫剤組成物。

〔請求項8〕殺虫剤組成物の適用がダニ目である請求項7記載の殺虫剤組成物。

〔請求項9〕殺虫剤組成物の適用がネコノミである請求項7記載の殺虫剤組成物。

〔発明の詳細な説明〕

〔0001〕

〔発明の属する技術分野〕本発明は水田、畑地、果樹園、森林または環境衛生場面における害虫防除、人または動物の寄生虫防除に応用することのできるN置換イン

ドール誘導体、その製造法および組成物に関する。

〔0002〕

〔従来の技術〕米国特許出願第3290332号および特開昭55-151505にN置換インドール誘導体が記述されているが、これらは窒素上の置換基がアリールまたはピリジル基は含まれておらず、またその寄生虫に対する防除活性についても述べられていない。特開2000-26409においてはN-アリール/ヘテロアリール置換の複素環物質が記述されているが、インドール環上の置換基についてはアシル基等の置換基については述べられていない。米国特許出願第5599774号にはN置換インドール誘導体が記載されているが、本出願にはインドール環上にアシル基を置換した化合物については記載されておらず、またその用途は除草剤に限定されている。また、特開平6-92935におけるN置換インドール誘導体はインドール環上にスルフェニル基、スルファニル基またはスルフォニル基が結合したものであり、インドール環上の3位にカルボニルの結合した化合物については記載されていない。

〔0003〕

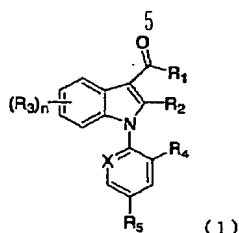
〔発明が解決しようとする課題〕農業分野および環境衛生分野での有害生物防除においては、従来用いられてきた有機リン系殺虫剤、カーバメート系殺虫剤、ピレスロイド系殺虫剤に対する抵抗性の発達が問題となっている。一方では、哺乳動物、天敵昆虫、環境に対して安全かつ負荷の少ないことも同時に要求されてきており、低薬量で有効かつ安全な新規防除剤の開発が望まれている。また近年、公衆衛生の飛躍的な改善により、伝染病やハエなどの衛生害虫発生率が大幅に減少したものの、依然としてヒトやペット（イヌ、ネコ等）、家畜類（ウシ、ブタ等）に寄生する寄生虫（ノミ、ダニ、線虫等）が問題となっている。これらを防除するための薬剤として、有機リン系殺虫剤、カーバメート系殺虫剤、ピレスロイド系殺虫剤、IGR剤、フィプロニル、イミダクロプリドなどの各種殺虫剤が使用されており、目的に応じて滴下液剤、噴霧剤、首輪、錠剤、チュアブル剤、顆粒剤、細粒剤、粉剤、シャンプー・リンス剤などの製剤を調整して使用している。しかしながらこれら防除剤は適用動物に対して高い安全性を提供しているとはいえず、またその防除効果および即効性の面に於いても、必ずしも十分ではない。

〔0004〕

〔課題を解決するための手段〕このような状況下、農業害虫防除、衛生害虫防除、寄生虫防除に関して鋭意検討を重ねた結果、一般式(1)で表される化合物群がこれら害虫に対して高い殺虫活性を示し、又動物への毒性が低く安全性が高いことを見出し、本発明に至った。即ち本発明は、〔1〕一般式(1)

〔0005〕

〔化6〕



(1)

【0006】〔式中XはNまたはCR₆を示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基またはNR₇R₈を示し；R₂はH、ハロゲンまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₂～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂、CN、COR₉、CO₂R₉、CONR₇R₈、SO₂R₉、SO₂NR₇R₈、SOR₉、SO₂R₉、OCOR₉、OCO₂R₉、OCONR₇R₈、OSO₂R₉、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいヘテロアリール基または置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基を示し；R₄はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂、CN、COR₉、CO₂R₉、CONR₇R₈、SO₂R₉、SO₂NR₇R₈、SOR₉、SO₂R₉、OCOR₉、OCO₂R₉、OCONR₇R₈、OSO₂R₉、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいヘテロアリール基または置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基を示し；R₅はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、NR₇R₈、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₆はHまたはハロゲンを示し；R₇、R₈およびR₉はそれぞれ独立にH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示すが、R₇およびR₈で5～6員環を形成してもよく；nは1、2、3または4を示す。〕で表されるN置換インドール誘導体、

【0007】〔2〕XがN、CF、CClまたはCBr₂を示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基またはNR₇R₈を示し；R₂はHまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₄は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基、NR₇R₈またはハロゲンを示し；R₅は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアル

10

20

30

40

ルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₇、R₈およびR₉はそれぞれ独立にH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示すが、R₇およびR₈で5～7員環を形成してもよく；nは1、2または3である〔1〕に記載のN置換インドール誘導体、

【0008】〔3〕XがNまたはCClを示し；R₁は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₂はHまたは置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲン、NO₂またはCNを示し；R₄は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₅は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；nは1または2である

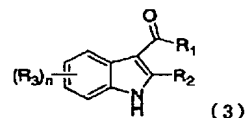
〔1〕に記載のN置換インドール誘導体、

【0009】〔4〕XがNまたはCClを示し；R₁はハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基を示し；R₂はHまたはC₁～C₆のアルキル基を示し；R₃はH、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₄はハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；R₅はハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、ハロゲンで置換されていてもよいC₁～C₆のアルコキシ基またはハロゲンを示し；nは1または2である〔1〕に記載のN置換インドール誘導体、

【0010】〔5〕XがNまたはCClを示し；R₁はトリフルオロメチル基を示し；R₂はHまたはメチル基を示し；R₃はH、メチル基、トリフルオロメチル基またはハロゲンを示し；R₄はハロゲンを示し；R₅はトリフルオロメチル基またはハロゲンを示し；nは1である〔1〕に記載のN置換インドール誘導体、

【0011】〔6〕一般式(3)

〔化7〕

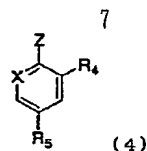


(3)

【0012】〔式中R₁、R₂、R₃およびnは〔1〕で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物を一般式(4)

【0013】

〔化8〕

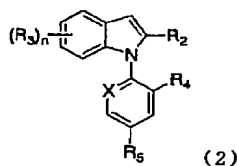


(4)

【0014】〔式中X、R₁およびR₂は〔1〕で定義したものと同一ものを示し、ZはハロゲンまたはR₁₀、SO₂を示し、R₁₀は置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基または置換されていてもよいC₁～C₆のアリール基を示す〕で表される化合物と縮合反応させることを特徴とするか、又は

【0015】一般式(2)

【化9】



(2)

【0016】〔式中R₂、R₃、R₄、R₅、Xおよびnは〔1〕で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物を一般式(6)

R₁COCl (6)

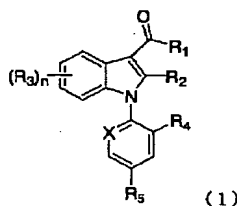
〔式中R₁は〔1〕で定義したものと同一ものを示す〕、または一般式(7)

(R₁CO)₂O (7)

〔式中R₁は〔1〕で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物と反応させることを特徴とする、一般式(1)

【0017】

【化10】



(1)

〔式中R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、Xおよびnは〔1〕で定義したものと同一ものを示す〕で表されるN置換インドール誘導体の製造法、

【0018】(7)前記〔1〕～〔5〕のいずれか1項に記載のN置換インドール誘導体を有効成分として含有することを特徴とする殺虫剤組成物、

【0019】〔8〕殺虫剤組成物の適用がダニ目である〔7〕記載の殺虫剤組成物、〔9〕殺虫剤組成物の適用がネコノミである〔7〕記載の殺虫剤組成物に関する。

【0020】次に本発明にかかる一般式(1)～

(4)、(6)～(7)における置換基X、R₁～R₁₀、Zおよびnの定義について説明する。

【0021】一般式(1)、(3)、(6)～(7)に

10

20

30

40

50

におけるR₁は、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルケニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキニル基、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基またはNR₇R₈を示す。

【0022】R₁における「置換されていてもよいC₁～C₆のアルキル基」の「C₁～C₆のアルキル基」としては、例えば直鎖または分鎖のC₁～C₆のアルキル基であって、その好適な置換基としてはハロゲンが挙げられ、その具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブromoメチル基、トリクロロメチル基などが挙げられる。R₁における「置換されていてもよいC₁～C₆のアルケニル基」の「C₁～C₆のアルケニル基」としては、例えば直鎖または分鎖のC₁～C₆のアルケニル基であって、その好適な置換基としてはハロゲンが挙げられ、具体例としては、ビニル基、トリクロロビニル基、アリル基、イソプロペニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、スチリル基などが挙げられる。R₁における「置換されていてもよいC₁～C₆のアルキニル基」の「C₁～C₆のアルキニル基」としては、例えば直鎖または分鎖のC₁～C₆のアルキニル基であって、その好適な置換基としてはハロゲンが挙げられ、具体例としては、エチニル基、プロピニル基、ブチニル基、ペンチニル基などが挙げられる。

【0023】R₁における「置換されていてもよいフェニル基」の好適な置換基としてはハロゲン、水酸基、C₁～C₆のアルキル基、ハロゲノC₁～C₆のアルキル基、C₁～C₆のアルコキシ基、ハロゲノC₁～C₆のアルコキシ基、ベンジルオキシ、フェノキシ等が挙げられ、具体例としては、フェニル基、ヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが挙げられる。R₁における「置換されていてもよいC₁～C₆のアルキルチオ基」の「C₁～C₆のアルキルチオ基」としては、例えば直鎖または分鎖のC₁～C₆のアルキルチオ基であって、その好適な置換基としてはハロゲン、フェニルが挙げられ、具体例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ベンジルチオ基、トリクロロメチルチオ基、モノフルオロジクロロメチルチオ基などが挙げられる。R₁は好ましくはメチル基、イソプロピル基、tert-ブチル基、クロロメチル基、トリフルオロメチル基、トリクロロメチル基、ビニル基、スチリル基、フェニル基などが挙げられ、特に好ましくはトリフルオロメチル基である。

【0024】一般式(1)～(3)におけるR₂は、H、

ハロゲンまたは置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基を示す。 R_1 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 における場合と同様であり、その具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、トリクロロメチル基などが挙げられる。 R_2 は、好ましくは、Hまたはメチル基である。

【0025】一般式(1)～(3)における R_3 は、H、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基、置換されていてもよい $C_2 \sim C_6$ のアルケニル基、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基、置換されていてもよいアルキルチオ基、 NR_4 、 R_4 、ハロゲン、 NO_2 、CN、 COR_5 、 CO_2R_5 、 $CONR_5$ 、 R_5 、 SO_2R_5 、 SO_2NR_5 、 SOR_5 、 SO_2R_5 、 $OCOR_5$ 、 OCO_2R_5 、 $OCOR_5$ 、 R_5 、 OSO_2R_5 、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいヘテロアリール基または置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基を示す。 R_1 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 における場合と同様であり、その具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、トリクロロメチル基、ベンジル基などが挙げられる。 R_2 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルケニル基」とは R_2 における場合と同様であり、その具体例としてはビニル基、アリル基、イソプロベニル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、スチリル基などが挙げられる。

【0026】 R_3 における「置換されていてもよい $C_2 \sim C_6$ のアルキニル基」とは R_3 における場合と同様であり、その具体例としてはエチニル基、プロピニル基、ブチニル基、ペンチニル基などが挙げられる。 R_4 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基」の「 $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基」とは、例えば直鎖または分鎖の $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基であって、その好適な置換基としてはハロゲン、フェニルが挙げられ、具体例としてはメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基、トリフルオロメトキシ基、ベンジルオキシ基などが挙げられる。 R_5 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキルチオ基」とは R_5 における場合と同様であり、その具体例としてはメチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ベンジルチオ基、トリクロロメチルチオ基、モノフルオロジクロロメチルチオ基などが挙げられる。

【0027】 R_3 における「 NR_4 」、「 $CONR_5$ 」、「 SO_2NR_5 」および「 $OCOR_5$ 」の R_4 と R_5 は、それぞれ独立にH、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示し、 R_1 および R_2 で

5～6員環を形成してもよい。「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、トリクロロメチル基、ベンジル基などが挙げられる。「置換されていてもよいフェニル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが挙げられる。また、 R_1 および R_2 によって形成できる5～6員環の具体例としては、ピロリジニル基、ピペリジニル基、モルホリノ基などが挙げられる。「 NR_4 」の具体例としては、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、tert-ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、ピロリジノ基、ピペリジノ基、モルホリノ基、アニリノ基などが挙げられる。「 $CONR_5$ 」の具体例としてはメチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、エチルアミノカルボニル基、ジエチルアミノカルボニル基、ピロリジノカルボニル基、ピペリジノカルボニル基、モルホリノカルボニル基、アニリノカルボニル基などが挙げられる。「 SO_2NR_5 」の具体例としてはスルファモイル基、メチルスルファモイル基、ジメチルスルファモイル基、エチルスルファモイル基、ジエチルスルファモイル基、プロピルスルファモイル基、イソプロピルスルファモイル基、ブチルスルファモイル基、tert-ブチルスルファモイル基、ペンチルスルファモイル基、ヘキシルスルファモイル基、ピロリジノスルファモイル基、ピペリジノスルファモイル基、モルホリノスルファモイル基、アニリノスルファモイル基などが挙げられる。「 $OCOR_5$ 」の具体例としては、メチルアミノカルボニルオキシ基、ジメチルアミノカルボニルオキシ基、エチルアミノカルボニルオキシ基、ジエチルアミノカルボニルオキシ基、ピロリジノカルボニルオキシ基、ピペリジノカルボニルオキシ基、モルホリノカルボニルオキシ基、アニリノカルボニルオキシ基などが挙げられる。

【0028】 R_3 における「ハロゲン」としてはフッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。 R_4 における「 CO_2R_5 」、「 CO_2R_5 」、「 SO_2R_5 」、「 SOR_5 」、「 SO_2R_5 」、「 $OCOR_5$ 」、「 OCO_2R_5 」および「 OSO_2R_5 」の R_4 は、 R_5 はそれぞれ独立にH、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示す。「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-

ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、トリクロロメチル基、ベンジル基などが挙げられる。「置換されていてもよいフェニル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが、それぞれ例示できる。「COR₂」の具体例としては、ホルミル基、アセチル基、トリフルオロアセチル基、トリクロロアセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、バレリル基、ピバロイル基、ベンゾイル基、トルオイル基、フラノイル基、ニコチノイル基、イソニコチノイル基、シンナモイル基などが挙げられる。「CO₂R₃」の具体例としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、tert-ブトキシカルボニル基、ベンジルオキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基などが、「SO₂R₃」の具体例としては、メトキシスルフォニル基、エトキシスルフォニル基、プロポキシスルフォニル基、ブトキシスルフォニル基、ベンジルオキシスルフォニル基、フェノキシスルフォニル基などが、「SOR₃」の具体例としては、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、プロピルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、ベンジルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基などが挙げられる。「SO₂R₃」の具体例としては、メチルスルフォニル基、エチルスルフォニル基、プロピルスルフォニル基、ブチルスルフォニル基、ベンジルスルフォニル基、フェニルスルフォニル基などが挙げられる。「OCOR₃」の具体例としては、アセチルオキシ基、プロピオニルオキシ基、ブチリルオキシ基、イソブチリルオキシ基、バレリルオキシ基、ピバロイルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、トルオイルオキシ基、フラノイルオキシ基、ニコチノイルオキシ基、イソニコチノイルオキシ基、シンナモイルオキシ基などが挙げられる。「OCO₂R₃」の具体例としては、メトキシカルボニルオキシ基、エトキシカルボニルオキシ基、プロポキシカルボニルオキシ基、ブトキシカルボニルオキシ基、tert-ブトキシカルボニルオキシ基、ベンジルオキシカルボニルオキシ基、フェノキシカルボニルオキシ基などが挙げられる。「OSO₂R₃」の具体例としては、メタンスルフォニルオキシ基、エタンスルフォニルオキシ基、プロパンスルフォニルオキシ基、ブタンスルフォニルオキシ基、ペンタンスルフォニルオキシ基、ヘキサンスルフォニルオキシ基、ベンゼンスルフォニルオキシ基、トルエンスルフォニルオキシ基などが挙げられる。

【0029】 R_2 における「置換されていてもよいフェニル基」とは R_1 における場合と同様であり、その具体例としては、ヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メ

チルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが挙げられる。 R_2 における「置換されていてもよいフェノキシ基」の好適な置換基としてはハロゲン、水酸基、 $C_1 \sim C_6$ のアルキル基、ハロゲン $C_1 \sim C_6$ のアルキル基、 $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基、ハロゲン $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基、フェノキシ等が挙げられ、具体例としては、フェノキシ基、ヒドロキシフェノキシ基、クロロフェノキシ基、メチルフェノキシ基、トリフルオロメチルフェノキシ基、メトキシフェノキシ基、トリフルオロメトキシフェノキシ基、フェノキシフェノキシ基などが挙げられる。 R_2 における「置換されていてもよいヘテロアリール基」の「ヘテロアリール」とは環上にO、S、N等を有す1~3環の複素芳香環基を示し、置換基として例えば $C_1 \sim C_6$ のアルキル基、ハロゲン等によって置換されてもよく、具体例としては、フラニル基、チエニル基、アゾリル基、ピリジル基、インドリル基等が挙げられる。置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基としては「ヘテロアリールオキシ基」とは環上にO、S、N等を有す1~3環の複素芳香環水酸基を示し、置換基として例えば $C_1 \sim C_6$ のアルキル基、ハロゲン等によって置換されてもよく、具体例としては、アゾリルオキシ基、ピリジルオキシ基、インドリルオキシ基などが挙げられる。 R_2 は好ましくは、H；メチル基、tert-ブチル基、トリフルオロメチル基などの置換されいてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基；F、Clなどのハロゲン；または、メトキシ基、トリフルオロメトキシ基などの置換されいてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基であり、特に好ましくはH、メチル基、トリフルオロメチル基、F、Clである。

【0030】 R_1 はH、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基、置換されていてもよいアルキルチオ基、NR₂、R₃、ハロゲン、NO₂、CN、COR₂、CO₂R₃、CONR₂、R₃、SO₂R₃、SO₂NR₂、R₃、SOR₃、SO₂R₃、OCOR₂、OCO₂R₃、OCONR₂、R₃、OSO₂R₃、置換されていてもよいフェニル基、置換されていてもよいフェノキシ基、置換されていてもよいヘテロアリール基または置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基を示す。 R_1 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 における場合と同様であり、その具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、トリクロロメチル基、ベンジル基などが挙げられる。 R_1 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルコキシ基」とは R_1 における場合と同様であり、その具体例としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基、トリフルオロメトキシ基、ベンジルオキシ基

などが挙げられる。 R_1 における「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキルチオ基」とは R_1 における場合と同様であり、その具体例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ベンジルチオ基、トリクロロメチルチオ基、モノフルオロジクロロメチルチオ基などが挙げられる。

【0031】 R_1 における「 NR_2R_3 」、「 $CONR_2R_3$ 」、「 $SO_2NR_2R_3$ 」および「 $OCONR_2R_3$ 」の R_2 と R_3 は、それぞれ独立にH、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示し、 R_2 および R_3 で5~6員環を形成してもよい。「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブromoメチル基、トリクロロメチル基、ベンジル基などが挙げられる。「置換されていてもよいフェニル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが挙げられる。また、 R_2 および R_3 によって形成できる5~6員環の具体例としては、ピロリジニル基、ピペリジニル基、モルホリノ基などが挙げられる。「 NR_2R_3 」の具体例としては、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、tert-ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、ピロリジノ基、ピペリジノ基、モルホリノ基、アニリノ基などが挙げられる。「 $CONR_2R_3$ 」の具体例としては、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、エチルアミノカルボニル基、ジエチルアミノカルボニル基、ピロリジノカルボニル基、ピペリジノカルボニル基、モルホリノカルボニル基、アニリノカルボニル基などが挙げられる。「 $SO_2NR_2R_3$ 」の具体例としては、スルファモイル基、メチルスルファモイル基、ジメチルスルファモイル基、エチルスルファモイル基、ジエチルスルファモイル基、プロピルスルファモイル基、イソプロピルスルファモイル基、ブチルスルファモイル基、tert-ブチルスルファモイル基、ペンチルスルファモイル基、ヘキシルスルファモイル基、ピロリジノスルファモイル基、ピペリジノスルファモイル基、モルホリノスルファモイル基、アニリノスルファモイル基などが挙げられる。「 $OCONR_2R_3$ 」の具体例としては、メチルアミノカルボニルオキシ基、ジメチルアミノカルボニルオキシ基、エチルアミノカルボニルオキシ基、ジエチルアミノカルボニルオキシ基、ピロリジノカルボニルオキシ基、ピペリジノカルボニルオキシ基、モ

ルホリノカルボニルオキシ基、アニリノカルボニルオキシ基などが挙げられる。

【0032】 R_1 における「ハロゲン」としてはフッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。 R_1 における「 CO_2R_9 」、「 CO_2R_9 」、「 SO_2R_9 」、「 SOR_9 」、「 SO_2R_9 」、「 $OCOR_9$ 」、「 OCO_2R_9 」および「 OSO_2R_9 」の R_9 は、 R_9 はそれぞれ独立にH、置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示す。

「置換されていてもよい $C_1 \sim C_6$ のアルキル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ブromoメチル基、トリクロロメチル基などが挙げられる。「置換されていてもよいフェニル基」とは R_1 の場合と同様であり、具体例としてはヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが例示できる。「 COR_9 」の具体例としては、ホルミル基、アセチル基、トリフルオロアセチル基、トリクロロアセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、バレリル基、ピバロイル基、ベンゾイル基、トルオイル基、フラノイル基、ニコチノイル基、イソニコチノイル基、シンナモイル基などが挙げられる。「 CO_2R_9 」の具体例としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、tert-ブトキシカルボニル基、ベンジルオキシカルボニル基、フェノキシカルボニル基などが挙げられる。「 SO_2R_9 」の具体例としては、メトキシスルフォニル基、エトキシスルフォニル基、プロポキシスルフォニル基、ブトキシスルフォニル基、ベンジルオキシスルフォニル基、フェノキシスルフォニル基などが挙げられる。「 SOR_9 」の具体例としては、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、プロピルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、ベンジルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基などが挙げられる。「 SO_2R_9 」としてはメチルスルフォニル基、エチルスルフォニル基、プロピルスルフォニル基、ブチルスルフォニル基、ベンジルスルフォニル基、フェニルスルフォニル基などが挙げられる。「 $OCOR_9$ 」の具体例としては、アセチルオキシ基、プロピオニルオキシ基、ブチリルオキシ基、イソブチリルオキシ基、バレリルオキシ基、ピバロイルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、トルオイルオキシ基、フラノイルオキシ基、ニコチノイルオキシ基、イソニコチノイルオキシ基、シンナモイルオキシ基などが挙げられる。「 OCO_2R_9 」としては、メトキシカルボニルオキシ基、エトキシカルボニルオキシ基、プロポキシカルボニルオキシ基、ブトキシカルボニルオキシ基、tert-ブトキシカルボニルオキシ基、ベンジルオキシカル

ポニルオキシ基、フェノキシカルボニルオキシ基などが挙げられる。「OSO₂R₃」の具体例としては、メタンスルフォニルオキシ基、エタンスルフォニルオキシ基、プロパンスルフォニルオキシ基、ブタンスルフォニルオキシ基、ペンタンスルフォニルオキシ基、ヘキサンスルフォニルオキシ基、ベンゼンスルフォニルオキシ基、トルエンスルフォニルオキシ基などが挙げられる。

【0033】R₁における「置換されていてもよいフェニル基」とはR₁における場合と同様であり、その具体例としては、ヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが挙げられる。R₁における「置換されていてもよいフェノキシ基」とはR₁における場合と同様であり、その具体例としては、フェノキシ基、ヒドロキシフェノキシ基、クロロフェノキシ基、メチルフェノキシ基、トリフルオロメチルフェノキシ基、メトキシフェノキシ基、トリフルオロメトキシフェノキシ基、フェノキシフェノキシ基などが挙げられる。R₁における「置換されていてもよいヘテロアリール基」とはR₁における場合と同様であり、その具体例としては、フラニル基、チエニル基、アゾリル基、ピリジル基、インドリル基が挙げられ、置換されていてもよいヘテロアリールオキシ基とはR₁における場合と同様であり、その具体例としては、アゾリルオキシ基、ピリジルオキシ基、インドリルオキシ基などが挙げられる。R₁は好ましくは、H；メチル基、tert-ブチル基、トリフルオロメチル基などの置換されいてもよいC₁~C₆のアルキル基；F、Clなどのハロゲン；または、メトキシ基、トリフルオロメトキシ基などの置換されいてもよいC₁~C₆のアルコキシ基であり、特に好ましくはClである。

【0034】一般式(1)~(2)、(4)におけるR₂はH、置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基、置換されていてもよいC₁~C₆のアルコキシ基、NR₃R₄、ハロゲン、NO₂またはCNを示す。R₂における「置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基」とはR₂における場合と同様であり、その具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、プロモメチル基、トリクロロメチル基などが挙げられる。R₂における「置換されていてもよいC₁~C₆のアルコキシ基」とはR₂における場合と同様であり、その具体例としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基、トリフルオロメトキシ基、ベンジルオキシ基などが挙げられる。

【0035】R₃における「NR₃R₄」のR₃とR₄は、それぞれ独立にH、置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示し、R₃およ

びR₄で5~6員環を形成してもよい。「置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基」とはR₃の場合と同様であり、具体例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、プロモメチル基、トリクロロメチル基、ベンジル基などが挙げられる。「置換されていてもよいフェニル基」とはR₃の場合と同様であり、具体例としてはヒドロキシフェニル基、クロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、tert-ブトキシフェニル基、ベンジルオキシフェニル基、トリフルオロメトキシフェニル基、フェノキシフェニル基などが例示できる。また、R₃およびR₄によって形成できる5~6員環の具体例としては、ピロリジニル基、ピペリジニル基、モルホリノ基などが挙げられる。「NR₃R₄」の具体例としては、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、プロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、ブチルアミノ基、tert-ブチルアミノ基、ペンチルアミノ基、ヘキシルアミノ基、ピロリジノ基、ピペリジノ基、モルホリノ基、アニリノ基などが挙げられる。

【0036】R₃における「ハロゲン」としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。R₃は好ましくは、F、Cl、Br、Iなどのハロゲン、トリフルオロメチル基などの置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基、または、トリフルオロメトキシ基などの置換されていてもよいC₁~C₆のアルコキシ基であり、特に好ましくはCl、トリフルオロメチル基である。

【0037】一般式(1)~(2)、(4)におけるXはNまたはCR₅を示し、R₅はHまたはハロゲンを示す。R₅における「ハロゲン」としては、F、Cl、Br、Iが挙げられる。Xは好ましくは、NまたはCClである。一般式(1)、(2)、(3)におけるnは1~4の整数であり、好ましくは1または2であり、特に好ましくは1である。

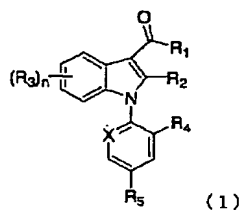
【0038】一般式(4)におけるZは、ハロゲンまたはR₁₀SO₂を示し、「ハロゲン」としては例えばCl、Br、Iなどが挙げられる。Zにおける「R₁₀SO₂」のR₁₀は、置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基または置換されていてもよいフェニル基を示す。「置換されていてもよいC₁~C₆のアルキル基」とはR₁₀における場合と同様であり、その具体例としてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、tert-ブチル基などが挙げられる。「置換されていてもよいフェニル基」とはR₁₀の場合と同様であり、具体例としてはクロロフェニル基、メチルフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、メトキシフェニル基、フェニル基などがそれぞれ例示できる。「R₁₀SO₂」の具体例としては、メタンスルフォニルオキシ基、ベンゼンスルフォニルオキシ基、トルエンスルフォニルオキシ基などが挙げられる。

【0039】一般式(1)の好ましい化合物としては表 *【0041】

1に示す化合物が挙げられる。

【0040】表1

【化11】



* 10

No	X	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	n
1	N	CH ₃	H	H	Cl	Cl	1
2	N	C ₂ H ₅	H	H	Cl	CF ₃	1
3	N	CH(CH ₃) ₂	H	H	Cl	CF ₃	1
4	N	C(CH ₃) ₃	H	H	Cl	CF ₃	1
5	N	cyclopropyl	CH ₃	H	Cl	CF ₃	1
6	N	cyclohexyl	H	H	Cl	CF ₃	1
7	N	CF ₃	H	H	Cl	CF ₃	1
8	N	CCl ₃	H	H	Cl	CF ₃	1
9	N	CCl=CCl ₂	H	H	Cl	CF ₃	1
10	N	C ₆ H ₅	H	H	Br	CF ₃	1
11	N	4-Cl-C ₆ H ₄	H	H	Br	CH ₃	1
12	N	NH ₂	H	H	CF ₃	CF ₃	1
13	N	NHCH ₃	CH ₃	H	F	OCF ₃	1
14	N	N(CH ₃) ₂	H	H	F	cyclohexyl	1
15	N	N(C ₂ H ₅) ₂	H	H	I	C(CH ₃) ₃	1
16	N	NHC ₆ H ₅	H	H	OCF ₃	Cl	1
17	N	SCH ₃	H	H	CF ₃	CF ₃	1
18	N	CH ₃	H	5-Cl	Cl	CF ₃	1
19	N	C ₂ H ₅	H	5-CN	Cl	CF ₃	1
20	N	CH(CH ₃) ₂	H	5-Br	Cl	CF ₃	1
21	N	C(CH ₃) ₃	H	5-F	Cl	CF ₃	1
22	N	cyclopropyl	H	5-OCH ₃	Cl	CF ₃	1
23	N	cyclohexyl	H	5-NO ₂	Cl	CF ₃	1
24	N	CF ₃	H	5-Cl	Cl	CF ₃	1
25	N	CCl ₃	H	5-CH ₃	Cl	CF ₃	1
26	N	CCl=CCl ₂	H	5-Br	Cl	CF ₃	1
27	N	C ₆ H ₅	H	5-Cl, 6-Cl	Cl	CF ₃	2
28	N	4-Cl-C ₆ H ₄	H	6-F	CH ₃	CF ₃	1
29	N	NH ₂	H	6-Br	Cl	CF ₃	1
30	N	NHCH ₃	H	6-CH ₃	Cl	CF ₃	1
31	N	N(CH ₃) ₂	H	6-CN	OCH ₃	CF ₃	1
32	N	N(C ₂ H ₅) ₂	H	6-NO ₂	Cl	CF ₃	1
33	N	NHC ₆ H ₅	H	6-OCH ₃	Cl	CF ₃	1
34	N	SCH ₃	H	4-Cl	Cl	CF ₃	1
35	CCl	CH ₃	H	H	Cl	OCF ₃	1
36	CCl	C ₂ H ₅	H	H	Cl	CF ₃	1
37	CCl	CH(CH ₃) ₂	H	H	Cl	CF ₃	1

19

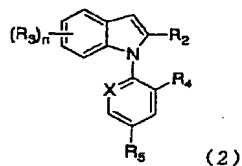
20

38	CCl	C(CH ₃) ₃	H	H	Cl	CF ₃	1
39	CCl	cyclopropyl	CH ₃	H	Cl	CF ₃	1
40	CCl	cyclohexyl	H	H	Cl	CF ₃	1
41	CCl	CF ₃	H	H	Cl	CF ₃	1
42	CCl	CCl ₃	H	H	Cl	CF ₃	1
43	CCl	CCl=CCl ₂	H	H	Br	CF ₃	1
44	CCl	C ₆ H ₅	H	H	Br	CF ₃	1
45	CCl	4-Cl-C ₆ H ₅	H	H	Br	CH ₃	1
46	CCl	NH ₂	H	H	Br	CF ₃	1
47	CCl	NHCH ₃	CH ₃	H	F	Cl	1
48	CCl	N(CH ₃) ₂	H	H	F	cyclohexyl	1
49	CCl	N(C ₂ H ₅) ₂	H	H	I	C(CH ₃) ₃	1
50	CCl	NHC ₆ H ₅	H	H	OCF ₃	Cl	1
51	CCl	SCH ₃	H	H	OCF ₃	CF ₃	1
52	CCl	CH ₃	H	5-Cl	Cl	CF ₃	1
53	CCl	C ₂ H ₅	H	5-CN	Cl	CF ₃	1
54	CCl	CH(CH ₃) ₂	H	5-Br	Cl	CF ₃	1
55	CCl	C(CH ₃) ₃	H	5-F	Cl	CF ₃	1
56	CCl	cyclopropyl	H	5-OCH ₃	Cl	CF ₃	1
57	CCl	cyclohexyl	H	5-NO ₂	Cl	CF ₃	1
58	CCl	CF ₃	H	5-Cl	Cl	CF ₃	1
59	CCl	CCl ₃	H	5-CH ₃	Cl	CF ₃	1
60	CCl	SCH ₃	H	7-Cl	Cl	CF ₃	1
61	CCl	C ₆ H ₅	H	5-Cl, 6-Cl	Cl	CF ₃	2
62	CCl	4-Cl-C ₆ H ₅	H	6-F	CH ₃	CF ₃	1
63	CCl	NH ₂	H	6-Br	Cl	CF ₃	1
64	CCl	NHCH ₃	H	6-CH ₃	Cl	CF ₃	1
65	CCl	N(CH ₃) ₂	H	6-CN	Cl	CF ₃	1
66	CCl	N(C ₂ H ₅) ₂	H	6-NO ₂	Cl	CF ₃	1
67	CCl	NHC ₆ H ₅	H	6-CO ₂ CH ₃	Cl	CF ₃	1

【0042】一般式(2)の好ましい化合物としては表2に示す化合物が挙げられる。

【0043】表2

【化12】



【0044】

No	X	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	R ₅	n
1	N	H	H		Cl	Cl	1
2	N	H	H		Cl	CF ₃	1
3	N	CH ₃	H		Cl	CF ₃	1
4	N	H	H		Br	CF ₃	1
5	N	H	H		Br	CH ₃	1
6	N	CH ₃	H		F	OCF ₃	1

40

7	N	H	H	CF ₃	CF ₃	1
8	N	H	H	F	cyclohexyl	1
9	N	H	H	I	C(CH ₃) ₃	1
10	N	H	H	CF ₃	Cl	1
11	N	H	5-Cl	Cl	CF ₃	1
12	N	H	5-CN	Cl	CF ₃	1
13	N	H	5-Br	Cl	CF ₃	1
14	N	H	5-F	Cl	CF ₃	1
15	N	H	5-OCH ₃	Cl	CF ₃	1
16	N	H	5-NO ₂	Cl	CF ₃	1
17	N	H	5-CH ₃	Cl	CF ₃	1
18	N	H	5-Cl, 6-Cl	Cl	CF ₃	2
19	N	H	6-F	CH ₃	CF ₃	1
20	N	H	6-Br	Cl	CF ₃	1
21	N	H	6-CH ₃	Cl	CF ₃	1
22	N	H	6-CN	OCH ₃	CF ₃	1
23	N	H	6-NO ₂	Cl	CF ₃	1
24	N	H	6-OCH ₃	Cl	CF ₃	1
25	CCl	H	H	Cl	Cl	1
26	CCl	H	H	Cl	CF ₃	1

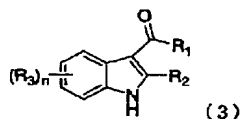
50

21					
27	CC1	CH ₃	H	Cl	CF ₃ 1
28	CC1	H	H	Br	CF ₃ 1
29	CC1	H	H	Br	CH ₃ 1
30	CC1	CH ₃	H	F	Cl 1
31	CC1	H	H	F	cyclohexyl 1
32	CC1	H	H	I	C(CH ₃) ₃ 1
33	CC1	H	H	OCF ₃	Cl 1
34	CC1	H	5-Cl	Cl	CF ₃ 1
35	CC1	H	5-CN	Cl	CF ₃ 1
36	CC1	H	5-Br	Cl	CF ₃ 1
37	CC1	H	5-F	Cl	CF ₃ 1
38	CC1	H	5-OCH ₃	Cl	CF ₃ 1
39	CC1	H	5-NO ₂	Cl	CF ₃ 1
40	CC1	H	5-CH ₃	Cl	CF ₃ 1
41	CC1	H	7-Cl	Cl	CF ₃ 1
42	CC1	H	5-Cl, 6-Cl	Cl	CF ₃ 2
43	CC1	H	6-F	CH ₃	CF ₃ 1
44	CC1	H	6-Br	Cl	CF ₃ 1
45	CC1	H	6-CH ₃	Cl	CF ₃ 1
46	CC1	H	6-CN	Cl	CF ₃ 1
47	CC1	H	6-NO ₂	Cl	CF ₃ 1
48	CC1	H	6-OCH ₃	Cl	CF ₃ 1
49	CC1	H	6-CO ₂ CH ₃	Cl	CF ₃ 1

【0045】一般式(3)の好ましい化合物としては表3に示す化合物が挙げられる。

【0046】表3

【化13】



【0047】

No.	X	R1	R2	R3	n
1	N	CH ₃	H	H	1
2	N	C ₂ H ₅	H	H	1
3	N	CH(CH ₃) ₂	H	H	1
4	N	C(CH ₃) ₃	H	H	1
5	N	cyclopropyl	CH ₃	H	1
6	N	cyclohexyl	H	H	1
7	N	CF ₃	H	H	1
8	N	CC13	H	H	1
9	N	CC1=CC12	H	H	1
10	N	C ₆ H ₅	H	H	1
11	N	4-Cl-C ₆ H ₅	H	H	1
12	N	NH ₂	H	H	1
13	N	NHCH ₃	CH ₃	H	1
14	N	N(CH ₃) ₂	H	H	1
15	N	N(C ₂ H ₅) ₂	H	H	1

22					
16	N	NHC ₆ H ₅	H	H	1
17	N	SCH ₃	H	H	1
18	N	CH ₃	H	5-Cl	1
19	N	C ₂ H ₅	H	5-CN	1
20	N	CH(CH ₃) ₂	H	5-Br	1
21	N	C(CH ₃) ₃	H	5-F	1
22	N	cyclopropyl	H	5-OCH ₃	1
23	N	cyclohexyl	H	5-NO ₂	1
24	N	CF ₃	H	5-Cl	1
25	N	CC13	H	5-CH ₃	1
26	N	CC1=CC12	H	5-Br	1
27	N	C ₆ H ₅	H	5-Cl, 6-Cl	2
28	N	4-Cl-C ₆ H ₅	H	6-F	1
29	N	NH ₂	H	6-Br	1
30	N	NHCH ₃	H	6-CH ₃	1
31	N	N(CH ₃) ₂	H	6-CN	1
32	N	N(C ₂ H ₅) ₂	H	6-NO ₂	1
33	N	NHC ₆ H ₅	H	6-OCH ₃	1
34	CC1	CH ₃	H	H	1
35	CC1	C ₂ H ₅	H	H	1
36	CC1	CH(CH ₃) ₂	H	H	1
37	CC1	C(CH ₃) ₃	H	H	1
38	CC1	cyclopropyl	CH ₃	H	1
39	CC1	cyclohexyl	H	H	1
40	CC1	CF ₃	H	H	1
41	CC1	CC13	H	H	1
42	CC1	CC1=CC12	H	H	1
43	CC1	C ₆ H ₅	H	H	1
44	CC1	4-Cl-C ₆ H ₅	H	H	1
45	CC1	NH ₂	H	H	1
46	CC1	NHCH ₃	CH ₃	H	1
47	CC1	N(CH ₃) ₂	H	H	1
48	CC1	N(C ₂ H ₅) ₂	H	H	1
49	CC1	NHC ₆ H ₅	H	H	1
50	CC1	SCH ₃	H	H	1
51	CC1	CH ₃	H	5-Cl	1
52	CC1	C ₂ H ₅	H	5-CN	1
53	CC1	CH(CH ₃) ₂	H	5-Br	1
54	CC1	C(CH ₃) ₃	H	5-F	1
55	CC1	cyclopropyl	H	5-OCH ₃	1
56	CC1	cyclohexyl	H	5-NO ₂	1
57	CC1	CF ₃	H	5-Cl	1
58	CC1	CC13	H	5-CH ₃	1
59	CC1	SCH ₃	H	7-Cl	1
60	CC1	C ₆ H ₅	H	5-Cl, 6-Cl	2
61	CC1	4-Cl-C ₆ H ₅	H	6-F	1
62	CC1	NH ₂	H	6-Br	1
63	CC1	NHCH ₃	H	6-CH ₃	1
64	CC1	N(CH ₃) ₂	H	6-CN	1
65	CC1	N(C ₂ H ₅) ₂	H	6-NO ₂	1

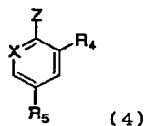
23

66	CCl	NH(C ₆ H ₅)	H	6-OCH ₃	1
67	CCl	SCH ₃	H	6-CO ₂ CH ₃	1

【0048】一般式(4)の好ましい化合物としては表4に示す化合物が挙げられる。

【0049】表4

【化14】

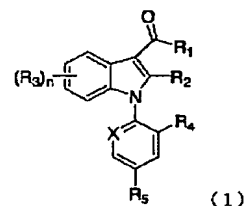


【0050】

No	X	Z	R ₁	R ₂
1	N	Cl	Cl	Cl
2	N	Cl	Cl	CF ₃
3	N	Cl	Cl	CH ₃
4	N	Cl	Cl	OCF ₃
5	N	Cl	F	Cl
6	N	Cl	Cl	C(CH ₃) ₃
7	N	Cl	F	C(CH ₃) ₃
8	N	Cl	Br	CF ₃
9	N	Br	Br	CH ₃
10	N	Br	F	CF ₃
11	N	OSO ₂ CH ₃	F	cyclohexyl
12	N	OSO ₂ CH ₃	I	C(CH ₃) ₃
13	N	OCOCH ₃	I	CF ₃
14	N	Cl	OCF ₃	CF ₃
15	N	Cl	OCH ₃	CF ₃
16	N	Cl	CH ₃	CF ₃
17	CCl	Cl	Cl	Cl
18	CCl	Cl	Cl	CF ₃
19	CCl	Cl	Cl	CH ₃
20	CCl	Cl	Cl	OCF ₃
21	CCl	Cl	F	CF ₃
22	CCl	Cl	Cl	C(CH ₃) ₃
23	CCl	Cl	F	C(CH ₃) ₃
24	CCl	Cl	Br	CF ₃
25	CCl	Br	Br	CH ₃
26	CCl	Br	F	CF ₃
27	CCl	OSO ₂ CH ₃	F	cyclohexyl
28	CCl	OSO ₂ CH ₃	I	C(CH ₃) ₃
29	CCl	OCOCH ₃	I	Cl
30	CCl	Cl	OCF ₃	CF ₃
31	CCl	Cl	OCH ₃	CF ₃
32	CCl	Cl	CH ₃	CF ₃

【0051】一般式(6)の好ましい具体例としては、CH₃COC(=O)Cl、C₆H₅COC(=O)Cl、(CH₃)₂CC(=O)Cl、(CH₃)₂CHC(=O)Cl、CF₃C(=O)Cl、CCl₃C(=O)Cl、c-C₆H₄C(=O)Cl、p-C₆H₄C(=O)Cl、C₆H₅C(=O)Cl、

20

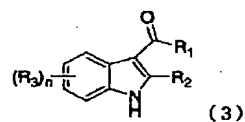


【式中R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、Xおよびnは前記で定義したものと同一ものを示す】で表されるN置換インドール誘導体は、一般式(3)

【0055】

【化16】

30

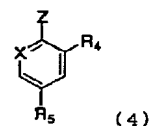


【式中R₁、R₂、R₃およびnは前記で定義したものと同一ものを示す】で表される化合物と一般式(4)

【0056】

【化17】

40



【式中X、Z、R₁およびR₂は前記で定義したものと同一ものを示す】で表される化合物を、溶媒中塩基の存在下縮合させることにより合成することができる。

【0057】本合成法の出発物質となる一般式(3)および一般式(4)で示される化合物は、従来公知の方法により合成することができる(J. Org. Chem., (1985), 89, 5451; Chem. - Ztg., (1986), 307; J. Heterocycl. Chem., (1988), 25, 469;

50

Synthesis and Chemistry of Agrochemicals IV, ACS Symposium Series 584, (1995) pp 443)。一般式(4)で表される化合物の使用量は、一般式(3)で表される化合物に対して、通常0.5~2当量、好ましくは0.8~1.2当量である。上記反応に用いる溶媒としては反応に不活性なものであれば何れでもよく、例えばヘキサンなどの脂肪族炭化水素、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、ジクロロメタン、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素、メタノールやエタノールなどの脂肪族低級アルコール、酢酸エチルエステル、酢酸ブチルエステルなどの脂肪族エステル、テトラヒドロフランなどのエーテル系炭化水素、N,N-ジメチルホルムアミドなどのアミド類、アセトニトリルなどのニトリル類、ジメチルスルフォキシドなどのスルフォキシド類、水及びそれらの混合物が挙げられる。

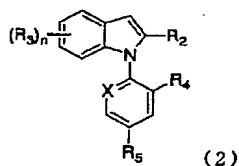
【0058】塩基としては例えば、KOHやNaOHなどのアルカリ金属水酸化物、 K_2CO_3 や Na_2CO_3 などのアルカリ金属炭酸塩、MeONaやEtONaやt-BuOKなどの脂肪族低級アルコールのアルカリ金属塩、NaHなどのアルカリ金属水素化物、ピリジンやトリエチルアミンなどの有機塩基、Triton Bなどの4級アンモニウム塩等であり、好ましくはアルカリ金属水酸化物、アルカリ金属炭酸塩、脂肪族低級アルコールのアルカリ金属塩、有機塩基である。特にピリジンやトリエチルアミンなどの有機塩基などの場合は、大過剰に用いて溶媒として使用することもできる。またその使用量は一般式(3)で表される化合物に対して通常0.5から10当量であり、好ましくは0.8から5当量である。反応温度は通常-20℃から溶媒還流温度であり、好ましくは0℃から80℃である。また、得られた一般式(1)で表されるN置換インドール誘導体はそのままでも用いることができるが、再結晶、蒸留およびシリカゲル等を用いたクロマトグラフィーなどの通常用いられる方法により精製することができる。

【0059】[合成ルート2]

第1工程：一般式(3)および一般式(4)で示される化合物から一般式(2)で示される化合物の製造；

【0060】一般式(2)

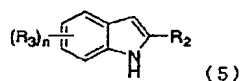
【化18】



〔式中 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、Xおよびnは前記で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物は、米国特許出願第5599774号や特開平6-92935号公報に記載の方法などにより、一般式(5)

【0061】

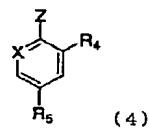
【化19】



〔式中 R_1 、 R_2 およびnは前記で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物を一般式(4)

【0062】

【化20】



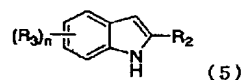
〔式中X、Z、 R_1 および R_5 は前記で定義したものと同一ものを示す〕で表される化合物を、溶媒中塩基の存在下縮合させることにより合成することができる。

【0063】本合成法の出発物質となる一般式(4)および一般式(5)で示される化合物は、従来公知の方法に準じて合成することができる。

【0064】一般式(5)の好ましい化合物としては表5に示す化合物が挙げられる。

【0065】表5

【化21】



【0066】

No	R_1	R_2	n
1	H	H	1
2	CH ₃	H	1
3	H	5-Cl	1
4	CH ₃	5-CN	1
5	H	5-Br	1
6	H	5-F	1
7	CH ₃	5-OCH ₃	1
8	H	5-NO ₂	1
9	H	5-CH ₃	1
10	H	5-Cl, 6-Cl	2
11	H	6-Cl	1
12	CH ₃	6-F	1
13	H	6-Br	1
14	H	6-CH ₃	1
15	H	6-CN	1
16	CH ₃	6-NO ₂	1
17	H	6-OCH ₃	1
18	H	4-Cl	1
19	H	7-Cl	1
20	H	6-CO ₂ CH ₃	1

27

【0067】一般式(4)で表される化合物の使用量は、一般式(5)で表される化合物に対して、通常0.5~2当量、好ましくは0.8~1.2当量である。上記反応に用いる溶媒としては反応に不活性なものであれば何れでもよく、例えばヘキサンなどの脂肪族炭化水素、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、ジクロロメタン、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素、メタノールやエタノールなどの脂肪族低級アルコール、酢酸エチルエステル、酢酸ブチルエステルなどの脂肪族エステル、テトラヒドロフランなどのエーテル系炭化水素、N,N-ジメチルホルムアミドなどのアミド類、アセトニトリルなどのニトリル類、ジメチルスルフォキシドなどのスルフォキシド類、水及びそれらの混合物が挙げられる。

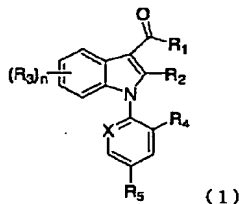
【0068】塩基としては例えば、KOHやNaOHなどのアルカリ金属水酸化物、 K_2CO_3 や Na_2CO_3 などのアルカリ金属炭酸塩、MeONaやEtONaやt-BuOKなどの脂肪族低級アルコールのアルカリ金属塩、NaHなどのアルカリ金属水素化物、ピリジンやトリエチルアミンなどの有機塩基、Triton Bなどの4級アンモニウム塩等であり、好ましくはアルカリ金属水酸化物、アルカリ金属炭酸塩、脂肪族低級アルコールのアルカリ金属塩、有機塩基である。特にピリジンやトリエチルアミンなどの有機塩基などの場合は、大過剰に用いて溶媒として使用することもできる。またその使用量は一般式(5)で表される化合物に対して通常0.5から10当量であり、好ましくは0.8から5当量である。反応温度は通常-20℃から溶媒還流温度であり、好ましくは0℃から80℃である得られた一般式

(2)で表されるN置換インドール誘導体はそのままでも次の第2工程に供することができるが、再結晶、蒸留およびシリカゲル等を用いたクロマトグラフィーなどの通常用いられる方法により精製した後、供することもできる。

【0069】第2工程：一般式(2)で示される化合物から一般式(1)で示される化合物の製造；

【0070】一般式(1)

【化22】

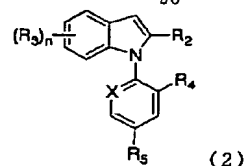


【式中 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、Xおよびnは前記で定義したものと同一ものを示す】で表されるN置換インドール誘導体は、一般式(2)

【0071】

【化23】

28



(2)

【式中 R_1 、 R_2 、 R_3 およびnは前記で定義したものと同一ものを示す】で表される化合物を、一般式(6)

R_1COCl (6)

10 【式中 R_1 は前記で定義したものと同一ものを示す】、または一般式(7)

$(R_1CO)_2O$ (7)

【式中 R_1 は前記で定義したものと同一ものを示す】で示される化合物と触媒の存在下反応させることにより合成することができる。

【0072】本合成法で用いられる一般式(6)または一般式(7)で示される化合物は、従来公知の方法により合成することができる。一般式(6)または一般式

20 (7)で表される化合物の使用量は、一般式(2)で表される化合物に対して、通常0.8~3当量、好ましくは1~2当量である。上記反応に用いる溶媒としては反応に不活性なものであれば何れでもよく、例えばジクロロメタン、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素、ニトロメタン、ニトロトルエンなどのニトロ化合物、二硫化炭素、およびそれらの混合物が挙げられる。触媒としては、酸クロライドや酸無水物を使ったFriedel-Crafts反応等のアシル化反応に用いられる触媒が挙げられ、ルイス酸触媒、例えば $AlCl_3$ などのアルミニウム化合物、 $TiCl_4$ などのチタン化合物、 $SnCl_4$ などのスズ化合物、 BF_3 などのホウ素化合物、 $ZnCl_2$ などの亜鉛化合物や、フッ化水素、硫酸、ポリリン酸などのブレンステッド酸触媒が挙げられる。またその使用量は一般式(6)で表される化合物または一般式(7)で表される化合物に対して通常0.5から10当量であり、好ましくは0.8から5当量である。反応温度は通常-20℃から溶媒還流温度であり、好ましくは0℃から100℃である。また、得られた一般式(1)で表されるN置換インドール誘導体はそのままでも用いることができるが、精製法としては再結晶、蒸留およびシリカゲル等を用いたクロマトグラフィーなどの通常用いられる方法により精製することができる。

40 【0073】本発明の一般式(1)で表されるN置換インドール誘導体(以下、本化合物と称する)を農用および衛生場面で使用する場合、使用目的に応じてそのまままたは効果を助長あるいは安定にするために農薬補助剤を混用して、農薬製造分野において一般的に行われている方法により、粉剤、細粒剤、粒剤、水和剤、フロアブル剤、乳剤、マイクロカプセル剤、油剤、エアゾール、加熱燻蒸剤(蚊取り線香、電気蚊取りなど)、フックキングなどの煙霧剤、非加熱燻蒸剤、毒餌などの任意の製剤形態の組成物にして使用することができる。

50

【0074】これらの種類の製剤は実際の使用に際しては、直接そのまま使用するか、または水で所望の濃度に希釈して使用することができる。ここに言う農業補助剤として担体（希釈剤）およびその他の補助剤、例えば展着剤、乳化剤、湿展剤、分散剤、固着剤、崩壊剤等を挙げることができる。液体担体としては、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、ブタノール、オクタノール、グリコールなどのアルコール類、アセトンなどのケトン類、ジメチルホルムアミドなどのアミド類、ジメチルスルホキシドなどのスルホキシド類、メチルナフタレン、シクロヘキサノン、動植物油、脂肪酸、脂肪酸エステルなど、または灯油、軽油などの石油分留物や水などが挙げられる。固体担体としては、クレー、カオリン、タルク、珪藻土、シリカ、炭酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイト、長石、石英、アルミナ、鋸屑などが挙げられる。

【0075】また乳化剤、分散剤としては通常界面活性剤が使用され、例えば高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ラウリルベタインなどの陰イオン系界面活性剤、陽イオン系界面活性剤、非イオン系界面活性剤、両イオン系界面活性剤が挙げられる。また展着剤としてはポリオキシエチレンニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルエーテルなどが挙げられ、湿展剤としてはポリオキシエチレンニルフェニルエーテルジアルキルスルホサクシネートなどが挙げられ、固着剤としてカルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコールなどが挙げられ、崩壊剤としてはリグニンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸ナトリウムなどが挙げられる。

【0076】さらにこれら本発明化合物は2種以上の配合使用によって、より優れた殺虫活性を発現させることも可能であり、また他の生理活性物質、殺虫剤としては例えばアレスリン、フタルスリン、パーメスリン、デカメスリン、フェンバレート、シクロプロトリンなどのピレスロイド系化合物、DDVP、フェニトロチオン、ダイアジノン、テメホスなどの有機リン系化合物、NAC、MTM C、BPMC、ピリマーなどのカーバメート系化合物、テブフェノジド、クロマフェノジドなどのヒドラジン系化合物、クロルフルアズロンなどのベンゾイルウレア系化合物、昆虫ホルモン剤、BT剤などが挙げられ、その他殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、除草剤、植物成長調節剤、肥料、その他の農業などと混合することによりさらに効力の優れた多目的組成物をつくることもでき、また相乗効果も期待することができる。さらに例えばビベルニルブトキサイド、サルホキサイド、サフロキサンなどのピレスロイド系殺虫剤用の共力剤として知られているものを加えることにより、この効果を数倍増強させることも可能となる。また、本発明化合物は光、熱、酸化等に安定性が高いが、必要に応じて酸化防止剤あるいは紫外線吸

収剤、例えばBHT、BHAのようなフェノール類、 α -ナフチルアミンなどのアリールアミン類、あるいはベンゾフェノン系化合物を安定剤として適宜加えることによって、より効果の安定した組成物を得ることができる。本発明組成物中の有効成分含有量は剤系形態、施用方法、その他の条件により異なり、場合によっては有効成分化合物のみでもよいが、通常は0.2~95%（重量）、好ましくは0.5~80%（重量）の範囲である。

【0077】本発明の化合物の使用量は剤形、施用する方法、時期、その他の条件によって変化するが、農園芸用剤、森林害虫用剤および牧野害虫用剤は通常10アール当り有効成分量で10~300g、好ましくは15~200gが使用され、衛生害虫用剤は通常1m²当り有効成分量で2~200mg、好ましくは5~100mgが使用される。たとえば粉剤は10アール当り有効成分で15~120g、粒剤は有効成分で30~240g、また乳剤、水和剤は有効成分で40~250gの範囲である。しかしながら特別の場合には、これらの範囲を超えることが、または下回ることが可能であり、また同時に必要でさえある。本化合物を殺寄生虫剤として用いる場合、N置換インドール誘導体のみをそのまま用いてもよいが、より効果的には、寄生虫を最も簡便化かつ効果的に防除するために、これら化合物群の滴下液剤、液剤、噴霧剤、泡状製剤、錠剤、顆粒剤、細粒剤、粉剤、カプセル剤、注射剤、座剤、チュアブル剤、シャンプー・リンス剤、首輪、飼料との混合剤など殺寄生虫剤として許容される製剤を調製し、獣医学的に公知の方法にて全身的または非全身的に適用動物に投与することが好ましく、液化滴剤、噴霧剤が特に好適な製剤である。

【0078】上記製剤中、例えば液化滴剤は、本化合物0.1~20重量部およびグリコールまたはグリコールモノアルキルエーテル10~95重量部含有する液状の経皮吸収剤であり、必要により適宜他の成分を含有させることができる。例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール、tert-ブタノール、ベンジルアルコール等のアルコール類、炭酸プロピレン、N-メチル-2-ピロリドン、水等の液状担体であり、グリコールまたはグリコールモノアルキルエーテルと容易に溶解するものである。これらは本防除剤中に1~85重量部、好ましくは3~70重量部含有し得る。本防除剤の動物への適用量は動物1頭当たり、組成物として通常0.001~10mlであり、本化合物量としては0.1~300mgである。また噴霧剤は、本化合物0.1~20重量部、グリコール類、アルコール類および界面活性剤を10~95重量部含有する液状の外部寄生虫駆虫剤であるが、必要により適宜、他の成分を含有し得る。例えば、グリコール類としては、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコール、グリコールモノアルキルエーテルを例示することができ、アルコール類としては、メタノール、エタノール、イソプロパノール、tert-ブタノール、ベンジルアルコール

などを例示することができる。界面活性剤としては、高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ラウリルベタインなどの陰イオン系界面活性剤、陽イオン系界面活性剤、両性イオン系界面活性剤があげられる。本防除剤の動物への施用量は適用する動物あたり、組成物として通常0.01~100ml程度、本化合物量として、0.1~300mg程度である。

【0079】その他の製剤についても、一般的に知られている界面活性剤、希釈剤、添加剤、安定剤など、組成物の調整に必要とされる成分を加えてつくること

【0080】本発明の殺虫剤は他の殺虫剤、殺線虫剤、殺ダニ剤、共力剤、動物用飼料と混合または併用することもできる。これらの例としては、例えばダイアジノンやDDVPなどの有機リン系化合物、カルボスルファンなどのカーバメート系化合物、シクロプロトリン、エトフェンプロクス、アレスリン、パーメスリンなどのピレスロイド系化合物、イミダクロプリドなどのクロロニコチル系化合物、フィプロニルなどのフェニルピラゾール系化合物、ルフエヌロンなどのベンゾイルウレア系化合物、メトプレネ、ピリプロキシフェンなどの幼若ホルモン類似化合物、クロマフェノジド、テブフェノジドなどのヒドラジン系化合物、ミルベマイシン、イベルメクチン、モキシデクチン、セラメクチンなどのマクロライド系化合物、その他ブプロフェジン、アザディラクチンなどが挙げられる。上記製剤の投与方法については、各々の製剤において行われている通常の方法にて実施することができ、また動物に対する本化合物の投与量としては、0.1mg~300mg/kgであり、好ましくは1mg~200mgで

【0081】本化合物の投与間隔は、その有効成分が動物の体内に有効量残留し、目的とする効果を十分発揮できる期間を設定する必要がある、このため各製剤によって異なる。例えば滴下液剤では投与間隔は1ヶ月から1年であり、好ましくは1ヶ月から6ヶ月であり、特に好ましくは1ヶ月から3ヶ月である。

【0082】本発明の殺虫組成物の適用できる具体的な害虫名を以下に挙げる。半翅目(Hemiptera)としては、例えばツマグロヨコバイ(Nephotettix cincticeps)、セジロウンカ(Sogatella furcifera)、トビイロウンカ(Nilaparvata lugens)、ヒメトビウンカ(Laodelphax striatellus)、ホソヘリカメムシ(Riptortus clavatus)、ミナミアオカメムシ(Nezara viridula)、ナシグンバイ(Stephanitis nashi)、オンシツコナジラミ(Trialeurodes vaporariorum)、ワタアブラムシ(Aphis gossypii)、モモアカアブラムシ(Myzus persicae)、ヤノネカイガラムシ(Unaspis yanonensis)、鱗翅目(Lepidoptera)としてはキンモンホソガ

yllostella)、ワタミガ(Promalactis inonisea)、リンゴコカクモンハマキ(Adoxophyes orana)、マメシクイガ(Leguminivora glycinivorella)、コブノメイガ(Canaphalocrocis medinalis)、ニカメイガ(Chilo suppressalis)、アワノメイガ(Ostrinia furnacalis)、ヨトウガ(Mamestra brassicae)、アワヨトウ(Pseudaletia separata)、ハスモンヨトウ(Spodopteralitura)、イネツトムシ(Parnara guttata)、モンシロチョウ(Pieris rapae crucivora)、ヘリオチス(Heliothis spp)、鞘翅目(Coleoptera)としては例えばドウガネブイブイ(Anomala cuprea)、マメコガネ(Popillia japonica)、イネゾウムシ(Echinocnemus scameus)、イネミズゾウムシ(Lissorhoptrus oryzophilus)、イネドロオイムシ(Oulema oryzae)、ヒメマルカツオブシムシ(Anthrenus verbasci)、コクヌスト(Tenebrio molitor)、コクゾウムシ(Sitophilus zeamais)、ニジュウヤホシテントウ(Henosepilachna vigintioctopunctata)、アズキゾウムシ(Callosobruchus chinensis)、マツノマダラカミキリ(Monochamus alternatus)、ウリハムシ(Aulacophora femoralis)、レプチノタルサ・デセムリネアタ(Leptinotarsa decemlineata)、フェドン・コクレアリアエ(Phaedon cochlearius)、ジアブロチカ(Diabrotica spp.)、膜翅目(Hymenoptera)としては例えばカブラハバチ(Athalia rosae japonensis)、ルリチュウレンジハバチ(Argesimilis)、双翅目(Diptera)としては例えばネッタイエカ(Culex pipiens fatigans)、ネッタシマカ(Aedes aegypti)、ダイズサヤタマバエ(Asphondylia spp.)、タネバエ(Hylemya platyura)、イエバエ(Musca domestica vicina)、ウリミバエ(Dacus cucurbitae)、イネハモグリバエ(Agromyza oryzae)、キンバエ(Lucilia spp.)、ノイエバエ(Musca harvei)、クロイエバエ(Musca Bezzii)、ノサシバエ(Haematobia irritans)、ツメトゲブユ(Simulium watensis)、ウシヌカカ(Culicoides oxystoma)、ウシアブ(Tabanus chrysurus)、アカイエカ(Culex pipiens)、ヒトスジシマカ(Aedes albopictus)、総翅目(Thysanoptera)としては例えばチャノキイロアザミウマ(Scirtothrips dorsalis)、ネギアザミウマ(Thrips tabaci)、ミナミキイロアザミウマ(Thrips palmi)、イネアザミウマ(Baliothrips bifurmis)、シラミ目(Anoplura)としては例えばコロモジラミ(Pediculus humanus corporis)、ケジラミ(Phthirus pubis)、ウジシラミ(Haematopinus eurysternus)、ヒツジシラミ(Damalinia ovis)、チャタテムシ目(Psocoptera)としては例えばコチャタテ(Trogium pulchellum)、ヒラタチャタテ(Liposcelis bostrychophilus)、直翅目としては例えばケラ(Gryllotalpa africana)、トノサマバッタ(Locusta migratoria)、コバネイナゴ(Oxya y

ezoensis)、チャバネゴキブリ (*Blattella germanica*)、クロゴキブリ (*Periplaneta fuliginosa*) などが挙げられ、隠翅目 (*Aphaniptera*) としては例えばヒトノミ (*Pulex irritans*)、ネコノミ (*Ctenocephalides felis*)、イヌノミ (*Ctenocephalides canis*)、ケオプスネズミノミ (*Xenopsylla cheopis*)、トゲノミの一種 (*Ceratophyllus* spp.) などが挙げられ、ダニ目としては例えばフタトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*)、オウシマダニ (*Boophilus microplus*)、ミミヒゼンダニ*

*の一種 (*Otodectes* spp.)、イエダニの一種 (*Ornithonyssus* spp.)、ツツガムシの一種 (*Trombicula* spp.)、イヌセンコウヒゼンダニの一種 (*Sarcoptes* spp.)、ネコショウセンコウヒゼンダニの一種 (*Notoedres* spp.)、リィピセファラスの一種 (*Rhipicephalus* spp.) などが挙げられる。

【0083】また、本発明の殺虫組成物が適用できる寄生虫およびそれによる病気を次に要約するが、これらに限定されるものではない。

病 名	寄生虫
BilharziosisまたはSchistosomiasis	<i>Schistosoma mansoni</i> , <i>S. Japonicum</i> , <i>S. Haematobium</i> (住血吸虫)
Ancylostomiasis	<i>Necator americanus</i> , <i>Ancylostoma duodenale</i> (鉤虫、線虫)
Ascariasis FilariasisまたはElephantiasis	<i>Ascaris lumbricoides</i> (回虫、線虫) <i>Wuchereria bancrofti</i> , <i>Brugia malayi</i> (線虫)
Onchocerciasisまたは River blindness Loiasis	<i>Onchocerca volvulus</i> (線虫)、 <i>Loa loa</i> (眼糸状虫、線虫)

【0084】また、本発明化合物が適用される対象動物としては、ヒト、牛や豚、羊、ニワトリなどの家畜や、イヌやネコ、マウス、ラット、ハムスター、リス、ウサギ、フェレット、アヒル、ハト、小鳥類などの小動物などが挙げられる。

【0085】

【実施例】以下に実施例を示し、本発明をさらに具体的に説明する

【0086】参考合成例：1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) インドール
インドール (2.0g) をジメチルホルムアミド (20ml) に溶解し、氷冷、窒素気流下で60%水素化ナトリウム (690mg) を添加した後、ジメチルホルムアミド (4ml) に溶解した2, 3-ジクロロ-5-(トリフルオロメチル) ピリジン (3.7g) を氷冷下に滴下した。滴下終了後60℃まで加熱し、同温にて2.5時間攪拌した。室温とした後、反応溶液を水中に注ぎ、酢酸エチルエステルにて抽出した。有機層を水にて洗浄した後、無水硫酸ナトリウムにて乾燥し、減圧下濃縮した。残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (n-ヘキサン/酢酸エチルエステル=30/1) で精製し、目的とする1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) インドール (4.85g, 収率95%) を得た。融点：52-53℃

【0087】実施例1：1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) -3-トリフルオロ

アセチルインドールの合成 (表1における化合物No. 7)

1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) インドール (1.0g) をCH₂Cl₂ (100ml) に溶解し、室温にて無水トリフルオロ酢酸 (1.06g) を滴下した。4時間加熱還流した後、無水トリフルオロ酢酸 (1.06g) を室温にて追加し、さらに4時間加熱還流した。室温とした後、反応溶液に水 (20ml) を加え、有機層を分取した。有機層をMgSO₄で乾燥後、溶媒留去した。得られた残留物をカラムクロマトグラフィーに付し、n-ヘキサン/AcOEt (20:1) 流分より1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) -3-トリフルオロアセチルインドール (1.15g, 収率87%) を白色固体として得た。(m.p. 64-66℃)

ジメチルスルホキシド85重量部、キシレン85重量部、ニューカルゲン900 (竹本油脂社製) 20重量部を混合溶解した。この混合溶液90重量部に得られた1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) -3-トリフルオロアセチルインドール10量部を混合し乳剤とした。

【0088】生物試験例1：ネコノミ成虫に対する効果 (死虫率)

実施例1にて得られた1-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル) -3-トリフルオロアセチルインドール (以下単にNo.7と記す。) を所定濃

度になるようにアセトン溶液に溶解し、0.1mlを直径2.8cm、高さ12cmのガラスチューブの底に滴下し、風乾した。風乾後、ネコノミ成虫10匹をガラスチューブに入れナイロンメッシュで蓋をし、室温：26℃、湿度：80%条件下に静置した。1日後、2日後に、生死を判定し、死虫率を算出した。対照薬剤としてアレスリン[(RS)-3-Allyl-2-methyl-4-oxocyclopent-2-enyl(1RS)cis,trans-2,2-dimethyl-3-(2-methylprop-1-enyl)cyclopropanecarboxylate]を用い、同様に死虫率を算出した。その試験結果を表6に示す。

【0089】

表6

供試化合物	濃度 μg/tube	1日後 死亡	2日後 死亡
No7	10	100	100
	1	100	100
	0.1	10	100
Allethrin	10	100	100
	1	0	0
対照	-	0	0

【0090】生物試験例2：フタトゲチマダニに対する効果

No7の乳剤をネオグラミン0.01%添加した水道水にて表に示した濃度に希釈した。その希釈液に市販の0.5X15cmのバスツールピペットを30秒間浸漬し、綿に垂直に立てて風乾した。風乾したバスツールピペットの頭部に綿を詰め、綿を詰めた端より、吸引ポン*

表8

供試化合物	投与量 (mg/kg)	累積死亡数(死亡数/供試数)			
		3時間後	1日後	7日後	14日後
No7	30	0/5	0/5	0/5	0/5
	100	0/5	0/5	0/5	0/5
	300	0/5	0/5	0/5	0/5
フィプロニル	30	0/5	1/5	1/5	1/5
	100	1/5	5/5	5/5	5/5

【0094】

【発明の効果】本発明によれば、農業分野および環境衛生分野における有害生物を、低薬量で有効に防除すること※40

* プにてマダニ孵化幼虫を10匹吸引し、先端をパテで封じた。吸引後ピペットはNa₂HPO₄の飽和溶液を入れたデシケータ内に静置し、23℃で保存した。観察は2日後、4日後に実施した。その結果を表7に示す。

【0091】

表7

供試化合物	濃度 μg/tube	2日後 死亡	4日後 死亡
No7	10	100	100
	1	100	100
Allethrin	10	100	100
	1	0	0
対照	-	0	0

【0092】生物試験例3：マウスにおける急性毒性試験

No7をオリーブ油に所定濃度になるように溶解し、ゾンデを用いてstd:ddy系雄マウスに直接胃内に10ml/kg投与した。投与薬量は30、100、300mg/kgとした。投与3時間後、1、7、14日後に、生死数を計測した。比較としてフィプロニル[(±)-5-Amino-1-(2,6-dichloro-α,α,α-trifluoro-p-tolyl)-4-trifluoromethylsulfinylpyrazole-3-carbonitrile]を用い、同様に生死数を計測した。その結果を表8に示す。

【0093】

※とができる。またこれらは、哺乳動物、天敵昆虫、環境に対しても安全かつ負荷の少ない防除を可能にする。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4C063 AA01 BB02 CC12 DD06 EE03
4C204 BB02 CB03 DB16 DB24 DB26
EB03 FB14
4H011 AC01 AC02 AC04 BA01 BA05
BB09 BC01 BC07 DA16